### VERTRAG ÜBER DE INTERNATIONALE ZUSAMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

17.14

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts

## **PCT**

REC'D 13 DEC 1999

## INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHTCT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Н 2938 РСТ	-	WEITERES VORG		Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)					
Internationales	Aktenzeichen	Internationales Anmelde	datum(Tag/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag)					
PCT/EP98/0	5355	24/08/1998	f.,	01/09/1997					
Internationale F C07C43/11	Patentklassification (IPK) oder	l nationale Klassifikation und	IPK						
Anmelder				1.00					
COGNIS DE	EUTSCHLAND GMBH e	t al.							
	ternationale vorläufige Prü erstellt und wird dem Anm			onale vorläufigen Prüfung beauftragte					
2. Dieser Bl	ERICHT umfaßt insgesam	t 5 Blätter einschließlich	h dieses Deckblatts.						
und/d Behö	Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT)  Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.								
E    C     C   V C   V E	Priorität  Keine Erstellung eines  Mangelnde Einheitlichk Begründete Feststellun gewerbliche Anwendba  Bestimmte angeführte to	Gutachtens über Neuhe eit der Erfindung g nach Artikel 35(2) hin rkeit; Unterlagen und E Unterlagen internationalen Anmeld	eit, erfinderische Tätig sichtlich der Neuheit, rklärungen zur Stützu ung	gkeit und gewerbliche Anwendbarkeit der erfinderische Tätigkeit und der ung dieser Feststellung					
Datum der Einre 27/01/1999	eichung des Antrags		Datum der Fertigstellu	ng dieses Berichts 0 9. 12. 99					
Prüfung beauftr Eu D- Te	tanschrift der mit der internatio ragten Behörde: uropäisches Patentamt 80298 München el. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 ax: +49 89 2399 - 4465	·	Bevollmächtigter Bedie Rousseau, F Tel. Nr. +49 89 2399 8	THE TOTAL PROPERTY OF THE PROP					

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER **PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP98/05355

1.	Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach
	Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm
	nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten.):

		hin vorgelegt wurde efügt, weil sie keine .			es Berichts a	als "ursprünglich eing	ereicht" und sind ihm	
	Beschreit	oung, Seiten:						
	1-8	ursprüi	ngliche Fassur	ng				
	Patentans	sprüche, Nr.:		.•				
	1-8	eingeg	angen am	2	24/08/1999	mit Schreiben vom	19/08/1999	
2.	Aufgrund o	der Änderungen sind	I folgende Unte	erlagen fort	gefallen:			
	☐ Besch	reibung, Seite	en:					
	☐ Anspr	rüche, Nr.:						
	☐ Zeich	nungen, Blatt	:					
3.	angeg		ach Auffassung	der Behör	de über den	erungen erstellt worde Offenbarungsgehalt		
١.	Etwaige zu	usätzliche Bemerkun	gen:	,				
<b>/</b> .						heit, der erfinderisch Stützung dieser Fest		r
١.	Feststellur	ng						
	Neuheit (N	1)		nsprüche nsprüche	7,8 1-6			
	Erfinderisc	he Tätigkeit (ET)		nsprüche	7.0			
				nsprüche	7-8			
	Gewerblich	ne Anwendbarkeit (C		nsprüche nsprüche	1-8			
	l interior							

2. Unterlagen und Erklärungen

siehe Beiblatt

US-A-4 093 418 (D1) offenbart in Beispiel 1 ein Randompolymerisat, welches 1. insgesamt 57.6 Gew.-% Ethylenoxid (EO)- und Propylenoxid (PO)- Einheiten enthält. Das durchschnittliche Molekulargewicht der verwendeten Fettalkoholmischung beträgt 220.7 g/mol (errechnet aus der Zusammensetzung, siehe Spalte 2, Zeilen 57-60), was bedeutet, daß das Molekulargewicht des EO-PO Teils im Randompolymerisat 299.8 g/mol beträgt. Weil der EO-PO Teil im Randompolymerisat 60 Gew.-% EO-Einheiten enthält, muß n (bzw. m) 4.09 (bzw. 2.07) betragen. Das Molverhältnis von PO zu EO beträgt 33.6: 66.4. Die Randompolymerisation erfolgt in Gegenwart einer wäßrigen Base, zum Beispiel Kaliumhydroxyd (siehe überbrückender Absatz zwischen den Spalten 3 und 4). Im Beispiel 2 wird ein Randompolymerisat mit m = 2.7 und n = 5.35 (gleiches Molverhältnis von PO zu EO) erhalten. Diese Randompolymerisate werden als oberflächenaktive Mittel in Reinigungsmitteln verwendet. Da nicht gezeigt wurde, daß die in D1 beschriebenen Zusammensetzungen mit Wasser nicht verdünnbar sind, scheint der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 6 nicht neu gegenüber D1 zu sein (Art. 33(2) PCT). In D1 werden in Reinigungsmitteln mindestens 10 Gew.-% an oberflächenaktivem Mittel verwendet. Da das Merkmal Wirkstoffkonzentrat Mengen an oberflächenaktivem Mittel ab 10 Gew.-% bezogen auf die Zusammensetzung einschließt (siehe vorliegender Anspruch 6), kann dieses Merkmal nicht als Unterscheidungsmerkmal gegenüber D1 angesehen werden.

Für die Beispiele 3 und 4 von D1 gilt folgendes. Für die Verwendung des C<sub>12</sub> (bzw. $C_{15}$ ) Fettalkohols allein würde man ein Randompolymerisat mit n = 4.48 und m = 2.24 (bzw. n = 5.49 und m = 2.78) erhalten. Da die Werte für die Fettalkoholmischung, die in den Beispielen 3 und 4 von D1 verwendet wird, zwischen den Werten für den C<sub>12</sub> Fettalkohol und den C<sub>15</sub> Fettalkohol liegen müssen, sind die Beispiele 3 und 4 von D1 (obwohl die C<sub>12-15</sub> Fettalkoholmischung in D1 nicht präziser definiert wird) zwangsläufig neuheitsschädlich für den Gegenstand der vorliegenden Ansprüche 1 bis 6 (Art. 33(2) PCT). Das gleiche gilt für das Beispiel 5 von D1, wo eine C<sub>10-12</sub> Fettalkoholmischung verwendet wird. Für die Verwendung des  $C_{10}$  Fettalkohols allein errechnet man ein Randompolymerisat mit n = 3.8 und m = 1.9.

Das Randompolymerisat, welches im Vergleichbeispiel A von GB-A-1 172 931 2. (D2) offenbart wird, entspricht den Polymerisaten, die in vorliegenden Ansprüchen

1 und 5 definiert werden (siehe Seiten 4 und 5; m = 1.78, n = 2.35). Desweiteren wird das im Vergleichsbeispiel A von D2 offenbarte Polymer als oberflächenaktives Mittel in einem Reinigungsmittel verwendet. Da nicht gezeigt wurde, daß die in D2 offenbarte Zusammensetzung mit Wasser nicht verdünnbar ist, scheint der Gegenstand der Ansprüche 1 und 5 nicht neu gegenüber D2 zu sein (Art. 33(2) PCT).

- JP-A-07 303 825 (D3) offenbart ein Randompolymerisat hergestellt aus einem 3. Mol eines  $C_{8-18}$  Fettalkoholes, 5 bis 15 Mol Ethylenoxid (entspricht  $5 \le n \le 15$ ) und 0.3 bis 5.0 Mol Propylenoxid (entspricht 0.3≤ m ≤5 ). Die in den vorliegenden Ansprüchen 1 bis 5 definierte Gruppe von Randompolymerisaten überlappt mit der, die in D3 definiert ist. Diese Randompolymerisate werden in Mengen von 17 und 20 Gew.-% zur Herstellung von Reinigungsmitteln eingesetzt (siehe Tabelle 1 und 2 von D3). Der Gegenstand der vorliegenden Ansprüche 1 bis 6 ist somit nicht neu gegenüber D3 (Art. 33(2) PCT).
- Keines der im internationalen Recherchenbericht zitierten Dokumente beschreibt 4. Konzentrate von Pestiziden oder Agrarchemikalien. Die Neuheit der vorliegenden Ansprüche 7 und 8 ist somit anzuerkennen (Art. 33(2) PCT). Die Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln in Konzentraten von Pestiziden oder Agrarchemikalien scheint dem Fachmann bekannt zu sein. Es wurde nicht gezeigt, daß die Auswahl der im vorliegenden Anspruch 1 definierten Randompolymerisate der Formel (I) zu einer für den Fachmann überraschenden technischen Wirkung führt. Dem Gegenstand der Ansprüche 7 und 8 liegt also keine erfinderische Tätigkeit im Sinne von Art. 33(3) PCT zugrunde, da er lediglich eine willkürliche, nicht zielgerichtete Auswahl im Rahmen der technischen Lehre, oberflächenaktive Mittel für Konzentrate von Pestiziden oder Agrarchemikalien zu verwenden, darstellt.
- Sollte die Anmelderin den Gegenstand der vorliegenden Stoffansprüche derart 5. einschränken, daß er gegenüber D1 bis D3 neu ist (unter anderem durch Einschränkung der Anzahl an Ethylenoxidgruppen), so sollte sie ebenfalls zeigen, daß die getroffene Auswahl aus den aus D1 und D3 bekannten Randompolymerisaten zielgerichtet und nicht willkürlich ist. Zur Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit sollte die Anmelderin neue Vergleichsbeispiele liefern. Es sollte darauf

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER **PRÜFUNGSBERICHT - BEIBLATT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP98/05355

geachtet werden, daß außer dem Unterscheidungsmerkmal alle anderen Merkmale gleich sind. Insbesondere wenn nicht als Unterscheidungsmerkmal angesehen sollte der gleiche Alkylrest für die Beispiele und Vergleichsbeispiele verwendet werden.

Der Gegenstand der vorliegenden Ansprüche ist gewerblich anwendbar (Art. 6. 33(4) PCT).

#### Neue Patentansprüche

1. Verwendung von Randompolymerisaten von Fettalkoholen mit Ethylenoxid und Propylenoxid der Formel (I),

$$R^1O(EO)_n(PO)_mH$$
 (I)

in der R1 für einen Alkylrest mit 6 bis 22 Kohlenstoffatomen

EO für CH2CH2O

PO für CHCH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>O und/oder CH<sub>2</sub>CHCH<sub>3</sub>O

n für eine ganze oder gebrochene Zahl von 2 bis 7

m für eine ganze oder gebrochene Zahl von 1,5 bis 3 steht und

das Molverhältnis von Propylenoxid zu Ethylenoxid im Bereich von 10:90 bis 50:50 liegt,

als oberflächenaktive Mittel in mit Wasser verdünnbaren Wirkstoffkonzentraten.

- 2. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Molverhältnis von Propylenoxid zu Ethylenoxid im Bereich von 25 : 75 bis 40 : 60 liegt.
- Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß n eine ganze oder gebrochene Zahl im Bereich von 3 bis 5 ist.
- 4. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß m eine ganze oder gebrochene Zahl im Bereich von 2 bis 2,5 ist.
- 5. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R¹ abgeleitet ist von einer Fettalkoholmischung, die mindestens zu 30 Gew.% Fettalkohole mit 14 bis 18 Kohlenstoffatomen und höchstens 70 Gew.% Fettalkohole mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen enthält.
- 6. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Randompolymerisate der Formel (I) in Mengen von 10 bis 30 Gew.% bezogen auf Mittel in Konzentraten von Wasch- und Reinigungsmitteln verwendet werden.

- 7. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Randompolymerisate der Formel (I) in Konzentraten von Pestiziden verwendet werden.
- Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Randompolymerisate der Formel
   (I) in Konzentraten von Agrarchemikalien verwendet werden.

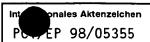
## **PCT**

#### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts	WEITERES siehe Mitteilung über o	die Übermittlung des internationalen
Н 2938 РСТ	VORGEHEN Hecherchenberichts (Figure 2017)	Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit nder Punkt 5
Internationales Aktenzeichen	Internationales Anmeldedatum	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
PCT/EP 98/05355	(Tag/Monat/Jahr) 24/08/1998	01/09/1997
Anmelder	24/06/1996	01/03/1337
Anmelder		
HENVEL VOMMANDITCESELLSCHAL	ET AUE AVIIEN of al	
HENKEL KOMMANDITGESELLSCHAF	T AUF AKTIEN EL AT.	
Dieser internationale Recherchenbericht wurd Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Int	de von der Internationalen Recherchenbehörde e ternationalen Büro übermittelt.	erstellt und wird dem Anmelder gemäß
Dieser internationale Recherchenbericht umfa		dance was Chand do Tanhailehai
Darüber hinaus liegt ihm jeweils e	ine Kopie der in diesem Bericht genannten Unte	nagen zum Stand der Technik bei.
1. Bestimmte Ansprüche haben si	ch als nichtrecherchierbar erwiesen (siehe Fe	eld I).
2. Mangelnde Einheitlichkeit der E	rfindung(siehe Feld II).	
	,	
	ist <b>ein Protokoll einer Nucleotid- und/oder An</b> ige des Sequenzprotokolls durchgeführt,	ninosäuresequenz offenbart; die internationale
ļ	usammen mit der internationalen Anmeldung ein	gereicht wurde.
das ve	om Anmelder getrennt von der internationalen Ar	nmeldung vorgelegt wurde,
	dem jedoch keine Erklärung beigefügt war, de Offenbarungsgehalt der internationalen Anme	aß der Inhalt des Protokolls nicht über den eldung in der eingereichten Fassung hinausgeht.
das v	von der Internationalen Recherchenbehörde in d	ie ordnungsgemäße Form übertragen wurde.
4. Hinsichtlich der Bezelchnung der Erfind	luna	
	ler vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehm	iat.
1 🖺	e der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgese	
		<del></del>
5. Hinsichtlich der Zusammenfassung	•	
X wird o	ler vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehm	igt.
festge		ngegebenen Fassung von dieser Behörde echerchenbehörde innerhalb eines Monats nach cherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.
6. Folgende Abbildung der <b>Zeichnungen</b> is	t mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen:	
	om Anmelder vorgeschlagen	keine der Abb.
	ler Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlag	
	liese Abbildung die Erfindung besser kennzeichr	

### INTERNATIONALER BECHERCHENBERICHT



a. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 C07C43/11 B01F17/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

#### B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole )  $\begin{tabular}{ll} IPK & 6 & C07C & C11D & B01F \end{tabular}$ 

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

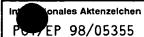
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

Kategorie®	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Α	US 3 382 285 A (R. J. EGAN) 7. Mai 1968 siehe Spalte 4, Zeile 74 - Spalte 5, Zeile 73; Ansprüche; Beispiel XIII	1-9
A	US 4 093 418 A (J. W.COMPTON) 6. Juni 1978 siehe Beispiele	1-8
Α	GB 1 172 931 A (MARLES-KUHLMANN-WYANDOTTE) 3. Dezember 1969 siehe Ansprüche; Beispiele; Tabelle 1	1-8
Α	US 3 770 701 A (M. CENKER) 6. November 1973 siehe das ganze Dokument	1-8
Α	EP 0 086 493 A (UNION CARBIDE) 24. August 1983 siehe Seite 13 - Seite 18	1-8

<ul> <li>Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen</li> <li>"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</li> <li>"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</li> </ul>	"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)  "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist	<ul> <li>"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer T\u00e4tigkeit beruhend betrachtet werden</li> <li>"Y" Ver\u00f6fentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer T\u00e4tigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Ver\u00f6fentlichung mit einer oder mehreren anderen Ver\u00f6fentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung f\u00fcr einen Fachmann naheliegend ist</li> <li>"&amp;" Ver\u00f6ffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</li> </ul>
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
22. Dezember 1998	07/01/1999
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Wright, M

Siehe Anhang Patentfamilie

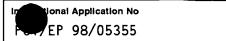
### INTERNATIONALER BECHERCHENBERICHT



		EP 98/05355
C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	<del></del> -
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommend	en Teile Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 019 173 A (BASF) 26. November 1980 siehe Seite 6, Zeile 29 - Seite 7, Zeile 18; Tabelle 1	1-8
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 96, no. 3, 29. März 1996 & JP 07 303825 A (LION CORP), 21. November 1995 in der Anmeldung erwähnt siehe Zusammenfassung	1-8
	·	

### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

on patent family members



	tent document in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
US	3382285	Α	07-05-1968	CA	799937	Α	
US	4093418	Α	06-06-1978	CA	1093420		13-01-1981
				US	4178262	A 	11-12-1979
GB	1172931	Α	03-12-1969	BE	694010	Α	17-07-1967
				FR	1508818	Α	25-03-1968
				NL	6702072	A,B	15-08-1967
				US	3504041	Α	31-03-1970
US	3770701	Α	06-11-1973	BE	683805	Α	16-12-1966
	•			CA	770644	Α	
				DE	1645011	Α	30-04-1970
				FR	1518634		08-07-1968
				<sup>1</sup> GB	1131409		
				- NL	6609326	A,B	09-01-1967
EP	86493	Α	24-08-1983	US	4438014	Α	20-03-1984
				CA	1202222	Α	25-03-1986
				JP	58147500	Α	02-09-1983
EP	19173	Α	26-11-1980	DE	2918826	Α	27-11-1980
				CA	1141251		15-02-1983
		•		JP	1712205		11-11-1992
				JP	2033760	В	30-07-1990
				JP	55152798	Α	28-11-1980
				US	4280919	Α	28-07-1981



### From the INTERNATIONAL BUREAU To: **PCT** United States Patent and Trademark NOTIFICATION OF ELECTION Office (Box PCT) (PCT Rule 61.2) Crystal Plaza 2 Washington, DC 20231 ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE Date of mailing: in its capacity as elected Office 11 March 1999 (11.03.99) Applicant's or agent's file reference: International application No.: H 2938 PCT PCT/EP98/05355 International filing date: Priority date: 24 August 1998 (24.08.98) 01 September 1997 (01.09.97) Applicant: BEHLER, Ansgar et al 1. The designated Office is hereby notified of its election made: X in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on: 27 January 1999 (27.01.99) in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2.	The election	X	was		•				-		-
			was not						-		
	made before t Rule 32.2(b).	the exp	piration of 19	months fro	m the priori	ty date or, w	here Rule 3	32 applies, v	within the ti	me limit un	der
											•

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Authorized officer:

J. Zahra

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

### Copy for the Elected Office (EO/US)



#### From the INTERNATIONAL BUREAU **PCT** To: NOTIFICATION OF THE RECORDING **COGNIS DEUTSCHLAND GMBH OF A CHANGE** Cognis IP Postfach 13 01 64 (PCT Rule 92bis.1 and D-40551 Düsseldorf Administrative Instructions, Section 422) **ALLEMAGNE** Date of mailing (day/month/year) 23 September 1999 (23.09.99) Applicant's or agent's file reference IMPORTANT NOTIFICATION H 2938 PCT International application No. International filing date (day/month/year) 24 August 1998 (24.08.98) PCT/EP98/05355 1. The following indications appeared on record concerning: the common representative the inventor the agent X the applicant State of Residence State of Nationality Name and Address DE DE HENKEL KOMMANDITGESELLSCHAFT AUF AKTIEN Telephone No. Henkelstrasse 67 0211 797-3773 D-40589 Düsseldorf Facsimile No. Germany 0211 798-7607 Teleprinter No. 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning: the residence the address the nationality the name the person State of Residence State of Nationality Name and Address DE DE COGNIS DEUTSCHLAND GMBH Postfach 13 01 64 Telephone No. D-40551 Düsseldorf 0211 797-7510 Germany Facsimile No. 0211 798-7607 Teleprinter No. Further observations, if necessary: Please be advised that the address for correspondence has been modified accordingly as indicated in the addressee box above. 4. A copy of this notification has been sent to: the designated Offices concerned X the receiving Office the elected Offices concerned the International Searching Authority other: the International Preliminary Examining Authority **Authorized officer** The International Bureau of WIPO Ingrid Aulich 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Telephone No.: (41-22) 338.83.38 Facsimile No.: (41-22) 740.14.35



## **PCT**

### INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference H 2938 PCT	FOR FURTHER ACTIO		cation of Transmittal of International Examination Report (Form PCT/IPEA/416)				
International application No. PCT/EP98/05355	International filing date (daj 24 August 1998 (24		Priority date (day/month/year) 01 September 1997 (01.09.1997)				
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 43/11, B01F 17/00							
Applicant COGNIS DEUTSCHLAND GMBH							
This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.							
2. This REPORT consists of a total of							
These annexes consist of a t	otal of 2 sheets		•				
3. This report contains indications rela	ting to the following items:						
I Basis of the report							
II Priority							
III Non-establishmen	of opinion with regard to no	elty, inventive	step and industrial applicability				
IV Lack of unity of in	vention						
V Reasoned statemer citations and expla	at under Article 35(2) with repartitions supporting such state	ard to novelty, nent	inventive step or industrial applicability;				
VI Certain documents	cited						
VII Certain defects in	the international application	•					
VIII Certain observatio							
Date of submission of the demand	Date	of completion	of this report				
27 January 1999 (27.01	.1999)	09 De	ecember 1999 (09.12.1999)				
Name and mailing address of the IPEA/EP European Patent Office D-80298 Munich, Germany Facsimile No. 49-89-2399-4465		orized officer	9-2399-0				



#### INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

PCT/EP98/05355

I. Basis of the report				
This report has been of under Article 14 are reference	drawn on the basis of (Replacement shee erred to in this report as "originally filed"	ets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation " and are not annexed to the report since they do not contain amendments.):		
the intern	ational application as originally filed.			
the descri	ption, pages1-8	, as originally filed,		
	pages	, filed with the demand,		
	pages	, filed with the letter of,		
	pages	, filed with the letter of		
the claims	•			
	Nos.	, as amended under Article 19,		
	Nos.			
		, filed with the letter of19 August 1999 (19.08.1999) ,		
	Nos	, filed with the letter of		
the drawi	ngs, sheets/fig	, as originally filed,		
	sheets/fig	, filed with the demand,		
	sheets/fig	, filed with the letter of,		
	sheets/fig	, filed with the letter of		
2. The amendments have	e resulted in the cancellation of:			
the descri	ption, pages	_		
the claims	s, Nos	_		
the drawi	ngs, sheets/fig	_		
	been established as if (some of) the a the disclosure as filed, as indicated in the	amendments had not been made, since they have been considered the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).		
4. Additional observation	ns, if necessary:			
	•			

Claims

Claims

YES

NO

1-8

<b>v</b> .	Reasoned statement under Articitations and explanations supp	cle 35(2) with regard to novelty, orting such statement	inventive step or industrial appl	licability;
1.	Statement		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
	Novelty (N)	Claims	7, 8	YES
		Claims	1-6	NO NO
	Inventive step (IS)	Claims		YES
		Claims	7-8	NO

#### 2. Citations and explanations

Industrial applicability (IA)

1. US-A-4 093 418 (D1) discloses in Example 1 a random polymer containing a total of 57.6 wt. % ethylene oxide (EO) and propylene oxide (PO) units. The average molecular weight of the fatty alcohol mixture used amounts to 220.7 g/mol (calculated from the composition; see column 2, lines 57-60). This means that the molecular weight of the EO-PO fraction in the random polymer amounts to 299.8 g/mol. Since the EO-PO fraction in the random polymer contains 60 wt. % EO units, n must equal 4.09 or m 2.07. The molar ratio of PO to EO equals 33.6: 66.4. Random polymerisation is carried out in the presence of an aqueous base, for example potassium hydroxide (see bridging paragraph between columns 3 and 4). In Example 2, a random polymer is obtained in which m = 2.7 and n = 5.35 (same molar ratio of PO to EO). These random polymers are used as surfactants in cleaning products. Since it was not demonstrated that the compositions described in D1 cannot be diluted with water, the subject matter of Claims 1-6 does not appear to be novel over D1 (PCT Article 33(2)). In D1, at least 10 wt. % surfactants are used in cleaning products. Since the active substance concentrate feature includes

Form PCT/IPEA/409 (Box V) (January 1994)

surfactant amounts of 10 wt. % or higher with respect to the composition (see present Claim 6), this feature cannot be considered a distinguishing feature in relation to D1.

In the case of Examples 3 and 4 of D1, the following remarks apply. If only  $C_{12}$  (or  $C_{15}$ ) fatty alcohol were used, a random polymer would be obtained in which n = 4.48 and m = 2.24 (or in which n = 5.49and m = 2.78). Since the values for the fatty alcohol mixture used in Examples 3 and 4 of D1 must lie between the values for the  $C_{12}$  fatty alcohol and the  $C_{15}$  fatty alcohol, Examples 3 and 4 of D1 (although the  $C_{12-15}$  fatty alcohol mixture is not further specified in D1) are necessarily prejudicial to the novelty of the subject matter of present Claims 1-6 (PCT Article 33(2)). The same applies to Example 5 of D1, in which a  $C_{10-12}$  fatty alcohol mixture is used. For the use of  $C_{10}$  fatty alcohol alone, a random polymer in which n = 3.8 and m = 1.9is calculated.

- 2. The random polymer disclosed in comparative Example A of GB-A-1 172 931 (D2) corresponds to the polymers defined in the present Claims 1 and 5 (see pages 4 and 5; m = 1.78, n = 2.35). Furthermore, the polymer disclosed in comparative Example A of D2 is used as surfactant in a cleaning product. Since it was not demonstrated that the composition disclosed in D2 cannot be diluted with water, the subject matter of Claims 1 and 5 does not appear to be novel over D2 (PCT Article 33(2)).
- 3. JP-A-07 303 825 (D3) discloses a random polymer produced from one mol of a  $C_{8-18}$  fatty alcohol, 5-15

mol ethylene oxide (which corresponds to  $5 \le n \le 15$ ) and 0.3-5.0 mol propylene oxide (which corresponds to  $0.3 \le m \le 5$ ). The group of random polymers defined in the present Claims 1-5 overlaps with the group defined in D3. Those random polymers are used in amounts of 17 and 20 wt. % for producing cleaning products (see Tables 1 and 2 of D3). The subject matter of the present Claims 1-6 is therefore not novel over D3 (PCT Article 33(2)).

- 4. None of the international search report citations describes pesticide or agrochemical concentrates. The novelty of the present Claims 7 and 8 should therefore be acknowledged (PCT Article 33(2)). The use of surfactants in pesticide or agrochemical concentrates appears to be known to a person skilled in the art. It was not demonstrated that the selection of the random polymers of Formula (I) defined in the present Claim 1 leads to a technical effect that is surprising to a person skilled in the art. The subject matter of Claims 7 and 8 therefore does not involve an inventive step (PCT Article 33(3)), since it represents only an arbitrary, nontargeted selection from the technical teaching on the use of surfactants for pesticide or agrochemical concentrates.
- 5. Should the applicants restrict the subject matter of the present substance claims in such a way that it is novel over D1-D3 (by limiting the number of ethylene oxide groups, inter alia), they should also demonstrate that the selection among the random polymers known from D1 and D3 has a specific purpose and is not arbitrary. The applicants should supply

new comparative examples in order to allow the assessment of inventive step. They should take care that, besides the distinguishing feature, all the other features remain the same. In particular, if not regarded as the distinguishing feature, the same alkyl radical should be used in the examples and comparative examples.

6. The subject matter of the present claims is industrially applicable (PCT Article 33(4)).

THIS PAGE BLANK (USPTO)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

#### B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 C07C C11D B01F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

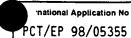
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 3 382 285 A (R. J. EGAN) 7 May 1968 see column 4, line 74 - column 5, line 73; claims; example XIII	1-9
A	US 4 093 418 A (J. W.COMPTON) 6 June 1978 see examples	1-8
A	GB 1 172 931 A (MARLES-KUHLMANN-WYANDOTTE) 3 December 1969 see claims; examples; table 1	1-8
A	US 3 770 701 A (M. CENKER) 6 November 1973 see the whole document	1-8
Α	EP 0 086 493 A (UNION CARBIDE) 24 August 1983 see page 13 - page 18	1-8

X Further documents are listed in the continuation of box C.	X Patent family members are listed in annex.
"Special categories of cited documents:  "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  "E" earlier document but published on or after the international filling date  "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  "P" document published prior to the international filling date but later than the pnority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.  "&" document member of the same patent familiy
Date of the actual completion of the international search  22 December 1998	Date of mailing of the international search report  07/01/1999
Name and mailing address of the ISA  European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk	Authorized officer
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Wright, M

THIS PAGE BLANK (USPTO)

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT



	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category '	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
1	EP 0 019 173 A (BASF) 26 November 1980 see page 6, line 29 - page 7, line 18; table 1	1-8	
<b>\</b>	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 96, no. 3, 29 March 1996 & JP 07 303825 A (LION CORP), 21 November 1995 cited in the application see abstract	1-8	
	•		
	•		

THIS PAGE BLANK (USPTO)

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

national Application No. PCT/EP 98/05355

	itent document I in search repor	t	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US	3382285	Α	07-05-1968	CA	799937 A	
US	4093418	Α	06-06-1978	CA	1093420 A	13-01-1981
				US	4178262 A	11-12-1979
GB	1172931	Α	03-12-1969	BE	694010 A	17-07-1967
				FR	1508818 A	25-03-1968
				NL	6702072 A,B	15-08-1967
				US	3504041 A	31-03-1970
US	3770701	Α	06-11-1973	BE	683805 A	16-12-1966
				CA	770644 A	
				DE	1645011 A	30-04-1970
			120	⊕ %FR /	1518634 A	08-07-1968
			e de la grandición de la g	GB	1131409 A	
				NL	6609326 A,B	09-01-1967
EP	86493	Α	24-08-1983	US	4438014 A	20-03-1984
				CA	1202222 A	25-03-1986
				JP	58147500 A	02-09-1983
EP	19173	A	26-11-1980	DE	2918826 A	27 <b>-</b> 11-1980
				CA	1141251 A	15-02-1983
				JР	1712205 C	11-11-1992
				JP	2033760 B	30-07-1990
				JР	55152798 A	28-11-1980
				US	4280919 A	28-07-1981

THIS PAGE BLANK (USPTO)



#### PCT LETORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6: (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/11593 C07C 43/11, B01F 17/00 A1 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 11. März 1999 (11.03.99) (81) Bestimmungsstaaten: US, europäisches Patent (AT, BE, CH, PCT/EP98/05355 (21) Internationales Aktenzeichen: CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, (22) Internationales Anmeldedatum: 24. August 1998 (24.08.98) Veröffentlicht (30) Prioritätsdaten: 1. September 1997 (01.09.97) 197 38 108.1 DE Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): HENKEL KOMMANDITGESELLSCHAFT AUF AKTIEN [DE/DE]; Henkelstrasse 67, D-40589 Düsseldorf (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BEHLER, Ansgar [DE/DE]; Siegfriedstrasse 80, D-46240 Bottrop (DE). SCHARES, Horst-Dieter [DE/DE]; Naheweg 11, D-40699 Erkrath (DE).

(54) Title: COLD-STABLE FATTY ALCOHOL ALKOXYLATES

(54) Bezeichnung: KÄLTESTABILE FETTALKOHOLALKOXYLATE

#### (57) Abstract

The invention relates to cold-stable random polymerisation products of fatty alcohols, comprising ethylene oxide and propylene oxide, the proportion of ethylene oxide and propylene oxide being fully determined. The invention relates to a process for producing such compounds and to their use as surfactants in active substance concentrates which are dilutable with water, especially in concentrates of washing and cleaning agents and also of pesticides and agricultural chemicals.

#### (57) Zusammenfassung

Die vorliegende Anmeldung betrifft kältestabile Randompolymerisate von Fettalkoholen mit Ethylenoxid und Propylenoxid, wobei Ethylenoxid und Propylenoxid in einem ganz bestimmten ausgewählten Mengenverhältnis vorliegen, ein Verfahren zur Herstellung derartiger Verbindungen sowie die Verwendung derartiger Verbindungen als oberflächenaktive Mittel in mit Wasser verdünnbaren Wirkstoffkonzentraten, insbesondere in Konzentraten von Wasch- und Reinigungsmitteln sowie von Pestiziden und Agrarchemikalien.

#### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

PCIV	eromentation.						
AL AM AT AU AZ BB BB BB BF BG BJ BR CA CF CG CH CI CM CN CU CZ DE DK EE	Albanien Armenien Österreich Australien Aserbaidschan Bosnien-Herzegowina Barbados Belgien Burkina Faso Bulgarien Benin Brasilien Belarus Kanada Zentralafrikanische Republik Kongo Schweiz Côte d'Ivoire Kamerun China Kuba Tschechische Republik Deutschland Dänemark Estland	ES FI FR GA GB GE GH GN IE IL IS IT JP KE KG KP  KR LC LI LK LR	Spanien Finnland Frankreich Gabun Vereinigtes Königreich Georgien Ghana Guinea Griechenland Ungarn Irland Israel Island Italien Japan Kenia Kirgisistan Demokratische Volksrepublik Korea Republik Korea Republik Korea Kasachstan St. Lucia Liechtenstein Sri Lanka Liberia	LS LT LU LV MC MD MG MK ML MN MR MN NE NL NO NZ PL PT RO RU SD SE SG	Lesotho Litauen Luxemburg Lettland Monaco Republik Moldau Madagaskar Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien Mali Mongolei Mauretanien Malawi Mexiko Niger Niederlande Norwegen Neuseeland Polen Portugal Rumänien Russische Föderation Sudan Schweden Singapur	SI SK SN SZ TD TG TJ TM TR TT UA UG US UZ VN YU ZW	Slowenien Slowakei Senegal Swasiland Tschad Togo Tadschikistan Turkmenistan Türkei Trinidad und Tobago Ukraine Uganda Vereinigte Staaten von Amerika Usbekistan Vietnam Jugoslawien Zimbabwe

PCT/EP98/05355

#### "Kältestabile Fettalkoholalkoxylate"

Die vorliegende Anmeldung betrifft kältestabile Randompolymerisate von Fettalkoholen mit Ethylenoxid und Propylenoxid, wobei Ethylenoxid und Propylenoxid in einem ganz bestimmten ausgewählten Mengenverhältnis vorliegt, ein Verfahren zur Herstellung derartiger Verbindungen sowie die Verwendung derartiger Verbindungen als oberflächenaktive Mittel in mit Wasser verdünnbaren Wirkstoffkonzentraten, insbesondere in Konzentraten von Waschund Reinigungsmitteln sowie von Pestiziden und Agrarchemikalien.

Alkoholalkoxylate, die auch als Alkylpolyglykolether bezeichnet werden, sind seit Jahrzehnten bekannte Verbindungen, die durch Umsetzung von Alkoholen mit Ethylenoxid und/oder Propylenoxid gewonnen werden. Die Umsetzung erfolgt bei erhöhten Temperaturen und Drucken in Anwesenheit saurer oder alkalischer Katalysatoren. Besondere praktische Bedeutung hat die Verwendung von basischen Verbindungen der Alkali- und Erdalkalimetalle für die Alkoxylierung von Fettalkoholen. Geeignete basische Verbindungen sind Alkali- und Erdalkalialkoxylate wie Natriummethylat und Kaliummethylat oder Alkali- und Erdalkalihydroxide wie Natriumhydroxid und Kaliumhydroxid. In letzter Zeit wird der Verwendung der Alkali- und Erdalkalihydroxide als basische Katalysatoren den Vorzug gegeben, da bei Einsatz von Alkali- und Erdalkalialkoxylaten organische Lösemitteln wie Methanol zwingend sind. Bei den Alkali- und Erdalkalihydroxiden dagegen läuft die Umsetzung in guten Ausbeuten auch im wäßrigen Medium ab.

Bei dem Einsatz wäßriger Lösungen von Alkali- und Erdalkalihydroxiden als basische Katalysatoren werden jedoch insbesondere bei der Ethoxylierung der Fettalkohole Produkte erhalten, die ein ungünstiges Kälteverhalten zeigen und oft schon bei Raumtemperatur zu Ausfällungen neigen. Dies ist unter anderem darauf zurückzuführen, daß die Anwesenheit wäßriger Lösungen von Alkali- und Erdalkalihydroxiden die Bildung von hochmolekularen

Polyethylenglykolen als Nebenprodukte begünstigt. Diese Polyethylenglykole lassen sich zwar prinzipiell durch Extraktion mit geeigneten Lösemitteln wie Wasser entfernen, aber hierzu bedarf es einen weiteren Prozeßschritt, der sehr zeitaufwendig und zudem nicht universell anwendbar ist.

Gemäß dem Abstract zur japanischen Anmeldung 07,303,825 aus der Zeitschrift CA Selects in : Alkoxylated Oleochemicals, Issue 1996, Seite 5, Hrsg. von der American Chemical Society, Columbus Ohio, Nr. 124, zeigen Randomaddukte von Alkoholen mit 8 bis 18 Kohlenstoffatomen, die 5 bis 15 Mol Ethylenoxid und 0,3 bis 5,0 Mol Propylenoxid enthalten, ein verbessertes Fließverhalten bei niedrigen Temperaturen. In dem einzigen angeführten Beispiel wird Laurylalkohol mit etwa 9 Mol Ethylenoxid und etwa 2,4 Mol Propylenoxid in Anwesenheit von Kaliumhydroxid als basischen Katalysator umgesetzt, wobei ein Produkt erhalten wird, welches einen Fießpunkt von 7,5°C aufweist. Bei kühler Lagerung unter 0°C kommt es aber auch bei diesem Produkt zu Ausfällungen, die störend sind.

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung bestand darin, Fettalkoholalkoxylate zur Verfügung zu stellen, die ein sehr günstiges Kälteverhalten zeigen und nicht zu Ausfällungen neigen. Das Kälteverhalten sollte derart ausgeprägt sein, daß die Produkte selbst bei Temperaturen unter 0°C den Zustand der Klarflüssigkeit zeigen, damit auch bei kühler Lagerung der Produkte keine Ausfällungen auftreten. Weiterhin war gewünscht, daß die erhaltenen Produkte eine sehr gute Auflösbarkeit in kaltem Wasser zeigen, damit sie einsetzbar sind als oberflächenaktive Verbindungen beispielsweise in flüssigen Konzentraten von Wasch- und Reinigungsmitteln. Zudem sollten die Verbindungen in Anwesenheit wäßriger Lösungen von Basen hergestellt worden sein.

Die Aufgabe konnte überraschenderweise durch Randompolymerisaten von Fettalkoholen gelöst werden, die in einem bestimmten ausgewählten Verhältnis Ethylenoxid und Propylenoxid randompolymerisiert enthalten.

Ein Gegenstand der vorliegenden Erfindung betrifft daher Randompolymerisate von Fettalkoholen mit Ethylenoxid und Propylenoxid der Formel (I)

 $R^{1}O(EO)_{n}(PO)_{m}H$  (I)

in der R<sup>1</sup> für einen Alkylrest mit 6 bis 22 Kohlenstoffatomen

EO für CH,CH,O

PO für CHCH3CH3O und/oder CH3CHCH3O

- n für eine ganze oder gebrochene Zahl von 2 bis 7 und
- m für eine ganze oder gebrochene Zahl von 1,5 bis 3 steht,

dadurch gekennzeichnet, daß das Molverhältnis von Propylenoxid zu Ethylenoxid im Bereich von 10: 90 bis 50: 50 liegt.

Besonders bevorzugt werden Randompolymerisate von Fettalkoholen der Formel (I), bei denen das Molverhältnis von Propylenoxid zu Ethylenoxid im Bereich von 25:75 bis 40:60 liegt.

Des weiteren werden solche Randompolymerisate von Fettalkoholen der Formel (I) bevorzugt, in der in Formel (I) n eine ganze oder gebrochene Zahl von 3 bis 5 ist, sowie Randompolymerisate der Formel (I), in der m eine ganze oder gebrochene Zahl von 2 bis 2,5 ist.

R¹ in Formel (I) leitet sich von Fettalkoholen der Formel R¹OH ab, die 6 bis 22 Kohlenstoffatome aufweisen. Unter Fettalkohole sind primäre aliphatische Alkohole zu verstehen, in der R¹ für einen aliphatischen, linearen oder verzweigten Kohlenwasserstoffrest mit 6 bis 22 Kohlenstoffatomen und 0 und/oder 1, 2 oder 3 Doppelbindungen steht. Typische Beispiele sind Capronalkohol, Caprylalkohol, 2-Ethylhexylalkohol, Caprinalkohol, Laurylalkohol, Isotridecylalkohol, Myristylalkohol, Cetylalkohol, Palmoleylalkohol, Stearylalkohol, Isostearylalkohol, Oleylalkohol, Elaidylalkohol, Petroselinylalkohol, Linolenylalkohol, Elaeostearylalkohol, Arachylalkohol, Gadoleylalkohol, Behenylalkohol, Erucylalkohol und Brassidylalkohol sowie deren technische Mischungen, die z.B. bei der Hochdruckhydrierung von technischen Methylestern auf Basis von Fetten und Ölen oder Aldehyden aus der Roelen'schen Oxosynthese sowie als Monomerfraktion bei der Dimerisierung von ungesättigten Fettalkoholen anfallen.

Bevorzugt im Sinne der Erfindung sind technische Fettalkohole, die zu mindestens 30 Gew.% Fettalkohole mit 14 bis 18 Kohlenstoffatomen und zu höchstens 70 Gew.% Fettalkohole mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen enthalten. Die Gewichtsangaben beziehen sich dabei auf die Fettalkoholmischung. Beispiele für derartige Fettalkoholmischungen sind Kokos-, Palm-, Palmkern- oder Talgfettalkohol.

Die erfindungsgemäßen Randompolymerisate zeichnen sich durch ein sehr gutes Kälteverhalten aus, d.h. selbst bei Temperaturen unter 0°C liegen fließfähige, bevorzugt klare Produkte vor. Die Bestimmung des Kälteverhaltens erfolgt dabei durch Bestimmung des Kältetrübungspunktes gemäß DIN ISO 3015. Weiterhin zeichnen sich die erfindungsgemäßen Produkte durch ein sehr gutes Löseverhalten in kaltem Wasser aus, d.h. sie besitzen sehr niedrige Auflösezeiten. Bestimmt wurde das Löseverhalten durch Messung der Zeit, bis sich 10 g der Verbindung in 90 g entionisiertem Wasser (Temperatur: 23 °C) unter Rühren optisch klar auflösten.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Randompolymerisaten von Fettalkoholen der Formel (I) durch Umsetzung von Ethylenoxid und Propylenoxid mit Fettalkoholen der Formel R¹OH in Gegenwart von wäßrigen Basen, dadurch gekennzeichnet, daß Propylenoxid und Ethylenoxid in einem Molverhältnis im Bereich von 10: 90 bis 40: 60 mit Fettalkoholen in an sich bekannter Weise umgesetzt werden.

Die Randompolymerisation stellt ein an sich bekanntes Verfahren dar, bei den man die bereits beschriebenen Alkohole der Formel R¹OH in Gegenwart wäßriger Basen in einem Druckgefäß bei Temperaturen im Bereich von 120 bis 190 °C und einem Druck von 3 bis 5 bar mit Propylen- und Ethylenoxid umsetzt. Als basische Verbindungen sind im Sinne der Erfindung wäßrige Lösungen von Alkali- und/oder Erdalkalihydroxiden einzusetzen, beispielsweise Kaliumhydroxid. Die Hydroxide werden üblicherweise in Mengen von 0,2 bis 5 Gew.%, vorzugsweise 0,3 bis 1,5 Gew.% - berechnet als Hydroxid und bezogen auf Gesamtansatz - eingesetzt. Es empfiehlt sich, die Hydroxide in Form 40 bis 60 gew.%iger wäßriger Lösungen einzusetzen. Propylen- und Ethylenoxid werden zusammen mit den Fettalkoholen zur

Reaktion gebracht. Dabei können sie separat über zwei verschiedene Düsen in den Reaktionsbehälter eingespeist werden oder aber auch vorher in einem Mischungsbehältnis vorgemischt und anschließend eingespeist werden. Erfindungswesentlich ist dabei, daß Propylenoxid und Ethylenoxid in den oben angegebenen Mengen und angegebenen Mischungsverhältnissen eingesetzt werden. In der Regel werden 2 bis 7 Mol Ethylenoxid, vorzugsweise 3 bis 5 Mol Ethylenoxid pro Mol Fettalkohol eingesetzt sowie 1,5 bis 3 Mol Propylenoxid, vorzugsweise 2 bis 2, 5 Mol, pro Mol Fettalkohol. Besondere Bedeutung hat das molare Mischungsverhältnis von Propylenoxid zu Ethylenoxid, das vorzugsweise im Bereich von 25: 75 bis 40: 60 liegt. Durch die gemeinsame Umsetzung von Ethylenoxid und Propylenoxid mit den Fettalkoholen werden sogenannte Randompolymerisate erhalten, d.h. die Anlagerung erfolgt in statistischer Verteilung.

Falls gewünscht, kann sich dem erfindungsgemäßen Verfahren eine Neutralisation des basischen Katalysators anschließen. Die Neutralisation kann mit anorganischen und/oder organischen Säuren wie Milchsäure, Oxalsäure, Citronensäure, Essigsäure, Phosphorsäure oder Methansulfonsäure erfolgen. Eine Neutralisation auf Werte von etwa 6,5 bis 7,5 empfiehlt sich in der Regel dann, wenn ungesättigte Fettalkohole eingesetzt werden, da sich diese leicht unter Einwirkung von Luftsauerstoff verfärben. Die Produkte fallen als 100 %ige klare Flüssigkeit an.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung betrifft die Verwendung der oben beschriebenen Randompolymerisaten von Fettalkoholen als oberflächenaktive Mittel in mit Wasser verdünnbaren Wirkstoffkonzentraten, beispielsweise in Konzentraten von Waschund Reinigungsmitteln oder in Konzentraten von Pestiziden und Agrarchemikalien. In jüngster Zeit werden beispielsweise Wasch- und Reinigungsmittel verstärkt in konzentrierter Form angeboten, die nur wenig Wasser enthalten. Derartige Konzentrate können vom Endanwender vor Gebrauch mit Wasser verdünnt werden. Es wird dabei erwartet, daß sich die Konzentrate schnell und ohne Bildung von Ausfällungen auflösen. Durch Verwendung der erfindungsgemäßen Verbindungen als oberflächenaktives Mittel wird dies erreicht. In Waschund Reinigungsmittelkonzentraten können die erfindungsgemäßen Produkte in Mengen von 10 bis 30 Gew.% - bezogen auf Wirkstoff im Konzentrat- verwendet werden. Des weiteren können in den Konzentraten übliche Bestandteile wie anionische Tenside, nichtionische

WO 99/11593 PCT/EP98/05355

Tenside, Konservierungsmittel, Lösevermittler usw., die für Wasch- und Reinigungsmittel üblich sind, in üblichen Mengen enthalten sein.

In Pestizid- und Agrarchemikalienkonzentraten können die erfindungsgemäßen Produkte in Mengen von 0,1 bis 15 Gew.% - bezogen auf Wirkstoff im Konzentrat – verwendet werden. Auch hier können in den Konzentraten übliche Bestandteile in üblichen Mengen enthalten sein.

#### Beispiele

#### 1. Herstellung eines Randompolymerisates eines C12/14-Alkohol+5EO+2EO

366,3 g (1, 89 Mol) eines C12/C14- Fettalkoholgemisches (etwa 40 Gew.% C12 und 60 Gew.% C14) wurden mit 5 g einer 50 Gew.%igen wäßrigen Kaliumhydroxid-Lösung in einem Druckbehälter vorgelegt. Der Behälter wurde 30 Minuten bei 100 °C evakuiert und anschließend mit Stickstoff belüftet. Es erfolgte bei 120 °C eine Zudosierung einer Mischung von 414,9 g (9,43 Mol) Ethylenoxid und 218,8 g (3,77 Mol) Propylenoxid. Der Druck betrug maximal 5 bar. Nach Beendigung der Umsetzung wurde noch eine Stunde bei 120 °C nachreagiert und nochmals 30 Minuten bei 120°C die Apparatur evakuiert. Das erhaltene Produkt wurde mit Milchsäure neutralisiert.

Man erhielt ein klares flüssiges Produkt mit einem Kältetrübungspunkt von -4°C; die Auflösezeit in Wasser betrug 5 Sekunden.

#### 2. Herstellung eines Randompolymerisates eines C12/14-Alkohol+3EO+2PO

Analog Beispiel 1 wurden 439,1 g (2,26 Mol) eines C12/C14-Fettalkohols mit einer Mischung von 298,5 g (6,78 Mol) Ethylenoxid und 262,4 g (4,52 Mol) Propylenoxid in Gegenwart von 5 g einer 50 gew.%igen wäßrigen Kaliumhydroxid-Lösung umgesetzt.

Man erhielt ein klares flüssiges Produkt mit einem Kältetrübungspunkt von -14 °C und die Auflösezeit in Wasser betrug 3 Sekunden.

Vergleichsbeispiel 1 Blockpolymerisat eines C12/14-Alkohols mit 1PO+5 EO+1PO

In Anlehnung an Beispiel 1 wurde die in Beispiel 1 beschriebene Mengen an Fettalkohol zunächst bei 120°C mit 109,4 g (1,89 Mol) Propylenoxid, dann bei 180°C mit 414,9 g (9,43 Mol) Ethylenoxid und nach vollständiger Abreaktion erneut bei 120 °C mit 109,4 g (1,89 Mol) Propylenoxid umgesetzt.

WO 99/11593 PCT/EP98/05355

Man erhielt ein klares flüssiges Produkt mit einem Kältetrübungspunkt von 1,5 °C und die Auflösezeit in Wasser betrug 75 Sekunden.

Vergleichsbeispiel 2 Blockpolymerisat eines C12/14- Alkohols mit 5EO+2PO

In Anlehnung an Beispiel 1 wurde die in Beispiel 1 beschriebene Menge an Fettalkohol zunächst bei 180°C mit 414,9 g (9,43 Mol) Ethylenoxid und anschließend bei 120 °C mit 218,8 g (3,72 Mol) Propylenoxid umgesetzt.

Man erhielt ein klares flüssiges Produkt mit einem Kältetrübungspunkt von 7,5 °C und die Auflösezeit in Wasser betrug 8 Sekunden.

#### Patentansprüche

1. Randompolymerisate von Fettalkoholen mit Ethylenoxid und Propylenoxid der Formel
(I)

$$R^{1}O(EO)_{n}(PO)_{m}H$$
 (I)

in der  $R^1$  für einen Alkylrest mit 6 bis 22 Kohlenstoffatomen EO für  $CH_2CH_2O$ 

PO für CHCH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>O und/oder CH<sub>2</sub>CHCH<sub>3</sub>O

- n für eine ganze oder gebrochene Zahl von 2 bis 7 und
- m für eine ganze oder gebrochene Zahl von 1,5 bis 3 steht,

dadurch gekennzeichnet, das das Molverhältnis von Propylenoxid zu Ethylenoxid im Bereich von 10: 90 bis 50 : 50 liegt.

- 2. Randompolymerisate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichent, daß das Molverhältnis von Propylenoxid zu Ethylenoxid im Bereich von 25:75 bis 40:60 liegt.
- 3. Randompolymerisate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichent, daß n eine ganze oder gebrochene Zahl im Bereich von 3 bis 5 ist.
- 4. Randompolymerisate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichent, daß m eine ganze oder gebrochene Zahl im Bereich von 2 bis 2,5 ist.
- 5. Randompolymerisate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichent, daß R¹ abgeleitet ist von einer Fettalkoholmischung, die mindestens zu 30 Gew.% Fettalkohole mit 14 bis 18 Kohlenstoffatomen und höchstens 70 Gew.% Fettalkohole mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen enthält.

WO 99/11593 PCT/EP98/05355

6. Verfahren zur Herstellung von Randompolymerisaten von Fettalkoholen mit Ethylenoxid und Propylenoxid der Formel (I)

 $R^{1}O(EO)_{n}(PO)_{m}H$  (I)

mit den in Anspruch 1 gegebenen Definitionen durch Umsetzung von Ethylenoxid und Propylenoxid mit Fettalkoholen der Formel R¹OH in Gegenwart von wäßrigen Basen, dadurch gekennzeichnet, daß das Propylenoxid und Ethylenoxid in einem Molverhältnis im Bereich von 10: 90 bis 40: 60 mit Fettalkoholen in an sich bekannter Weise umgesetzt werden.

- 7. Verfahren nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß das Molverhältnis von Propylenoxid zu Ethylenoxid im Bereich von 25 : 75 bis 40 : 60 liegt.
- 8. Verfahren nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß eine Fettalkoholmischung, die mindestens zu 30 Gew.% Fettalkohole mit 14 bis 18 Kohlenstoffatomen und höchstens 70 Gew.% Fettalkohole mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen enthält, umgesetzt wird.
- 9. Verwendung von Randompolymerisaten von Fettalkoholen der Formel (I) nach Anspruch 1 als oberflächenaktives Mittel in mit Wasser verdünnbaren Wirkstoffkonzentraten.



national Application No PCT/EP 98/05355

A. CLASSIFI	CATION OF SUBJEC	TMATTER
IPC 6	C07C43/11	B01F17/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

#### B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 C07C C11D B01F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.			
A	US 3 382 285 A (R. J. EGAN) 7 May 1968 see column 4, line 74 — column 5, line 73; claims; example XIII	1-9			
Α	US 4 093 418 A (J. W.COMPTON) 6 June 1978 see examples	1-8			
Α	GB 1 172 931 A (MARLES-KUHLMANN-WYANDOTTE) 3 December 1969 see claims; examples; table 1	1-8			
Α	US 3 770 701 A (M. CENKER) 6 November 1973 see the whole document	1-8			
Α	EP 0 086 493 A (UNION CARBIDE) 24 August 1983 see page 13 - page 18	1-8			
	-/				

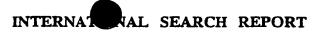
X Further documents are listed in the continuation of box C.	Patent family members are listed in annex.
<ul> <li>Special categories of cited documents:</li> <li>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</li> <li>"E" earlier document but published on or after the international filing date</li> <li>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</li> <li>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</li> <li>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</li> </ul>	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.  "&" document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
22 December 1998	07/01/1999
Name and mailing address of the ISA	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Wright, M

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

national Application No
PCT/EP 98/05355

	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT  Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
Category 3	Citation of document, with indication, where appropriate, of the research passages			
4	EP 0 019 173 A (BASF) 26 November 1980 see page 6, line 29 - page 7, line 18; table 1	1-8		
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 96, no. 3, 29 March 1996 & JP 07 303825 A (LION CORP), 21 November 1995 cited in the application see abstract	1-8		
		·		



Information on patent family members

national Application No PCT/EP 98/05355

Patent document cited in search repo	rt	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 3382285	Α	07-05-1968	CA	799937 A	
US 4093418	A	06-06-1978	CA US	1093420 A 4178262 A	13-01-1981 11-12-1979
GB 1172931	А	. 03-12-1969	BE FR NL US	694010 A 1508818 A 6702072 A,B 3504041 A	17-07-1967 25-03-1968 15-08-1967 31-03-1970
US 3770701	A	06-11-1973	BE CA DE FR GB NL	683805 A 770644 A 1645011 A 1518634 A 1131409 A 6609326 A,B	16-12-1966 30-04-1970 08-07-1968 09-01-1967
EP 86493	A	24-08-1983	US CA JP	4438014 A 1202222 A 58147500 A	20-03-1984 25-03-1986 02-09-1983
EP 19173	A	26-11-1980	DE CA JP JP JP US	2918826 A 1141251 A 1712205 C 2033760 B 55152798 A 4280919 A	27-11-1980 15-02-1983 11-11-1992 30-07-1990 28-11-1980 28-07-1981

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 C07C43/11 B01F17/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

#### **B. RECHERCHIERTE GEBIETE**

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 6 C07C C11D B01F

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 3 382 285 A (R. J. EGAN) 7. Mai 1968 siehe Spalte 4, Zeile 74 - Spalte 5, Zeile 73; Ansprüche; Beispiel XIII	1-9
Α	US 4 093 418 A (J. W.COMPTON) 6. Juni 1978 siehe Beispiele	1-8
A	GB 1 172 931 A (MARLES-KUHLMANN-WYANDOTTE) 3. Dezember 1969 siehe Ansprüche; Beispiele; Tabelle 1	1-8
Α	US 3 770 701 A (M. CEŅKER) 6. November 1973 siehe das ganze Dokument	1-8
Α	EP 0 086 493 A (UNION CARBIDE) 24. August 1983 siehe Seite 13 - Seite 18	1-8

- Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen
- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er-scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 22. Dezember 1998 07/01/1999 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 Wright, M



In ationales Aktenzeichen
PCT/EP 98/05355

	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	Betr. Anspruch Nr.
Kategone <sup>.</sup>	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	
A	EP 0 019 173 A (BASF) 26. November 1980 siehe Seite 6, Zeile 29 - Seite 7, Zeile 18; Tabelle 1	1-8
Ą	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 96, no. 3, 29. März 1996 & JP 07 303825 A (LION CORP), 21. November 1995 in der Anmeldung erwähnt siehe Zusammenfassung	1-8

#### INTERNATIONALER REGAERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

rationales Aktenzeichen
PCT/EP 98/05355

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument			Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 3	3382285	Α	07-05-1968	CA	799937 A	
US 4	4093418	Α	06-06-1978	CA US	1093420 A 4178262 A	13-01-1981 11-12-1979
GB 1	1172931	Α	03-12-1969	BE FR NL US	694010 A 1508818 A 6702072 A,B 3504041 A	17-07-1967 25-03-1968 15-08-1967 31-03-1970
US 3	3770701	Α	06-11-1973	BE CA DE FR GB NL	683805 A 770644 A 1645011 A 1518634 A 1131409 A 6609326 A,B	16-12-1966 30-04-1970 08-07-1968 09-01-1967
EP 8	86493	Α	24-08-1983	US CA JP	4438014 A 1202222 A 58147500 A	20-03-1984 25-03-1986 02-09-1983
EP :	19173	A	26-11-1980	DE CA JP JP JP US	2918826 A 1141251 A 1712205 C 2033760 B 55152798 A 4280919 A	27-11-1980 15-02-1983 11-11-1992 30-07-1990 28-11-1980 28-07-1981

Ç,

## This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

#### **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:
☐ BLACK BORDERS
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
☐ FADED TEXT OR DRAWING
☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
GRAY SCALE DOCUMENTS .
LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
· ·

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

## THIS PAGE BLANK (USPTO)